Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi Sayı 18, S. 552-561, Mart-Nisan 2020 © Telif hakkı EJOSAT'a aittir **Araştırma Makalesi**



European Journal of Science and Technology No. 18, pp. 552-561, March-April 2020 Copyright © 2020 EJOSAT **Research Article**

Manyetik Aktif Karbon/ZnO Kompozitinin Sentezlenmesi ve Boyar Madde Giderimi Üzerine Denge ve Kinetik Uygulaması

Eda Çiv¹, Atakan Toprak^{2*}, Kadriye Bozgeyik³

¹ Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi, Nanoteknoloji Mühendisliği Bölümü, Zonguldak, Türkiye (ORCID: 0000-0003-4704-1769)
² Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi, Kimya ve Kimyasal Proses Teknolojisi Bölümü, Zonguldak, Türkiye (ORCID: 0000-0003-0008-1456)
³ Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi, Kimya Bölümü, Zonguldak, Türkiye (ORCID: 0000-0002-1958-2974)

(İlk Geliş Tarihi 20 Ocak 2020 ve Kabul Tarihi 16 Mart 2020)

(DOI: 10.31590/ejosat.673884)

ATIF/REFERENCE: Çiv, E, Toprak, A. & Bozgeyik, K. (2020). Manyetik Aktif Karbon/ZnO Kompozitinin Sentezlenmesi ve Boyar Madde Giderimi Üzerine Denge ve Kinetik Uygulaması. *Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi*, (18), 552-561.

Öz

Bu çalışmamızda, atık kauçuktan kimyasal aktivasyonu ile aktif karbon, ardından da tek basamakta termal yöntem ile manyetik aktif karbon/ZnO nanokompozitleri sentezlenmiştir. Sentezlenen kompozitlerin sulu çözeltide boyar madde adsorpsiyon denge ve kinetik çalışmaları incelenmiştir. Nanokompozitlerin fizikokimyasal özellikleri ve karakterizasyonu azot adsorpsiyonu, SEM-EDX ve XRD ile belirlenmiştir. Beş farklı manyetik aktif karbon/ZnO nanokompozitlerinin sulu çözeltide Malahit yeşili (MG) için Langmuir ve Freunlich izoterm modelinde uygulanarak adsorpsiyon kapasiteleri belirlenmiştir. Elde edilen sonuçlara göre en yüksek adsorpsiyon kapasitesi hekzametilen tetramin (HMTA) ve ZnCl₂ ile üretilen manyetik nanokompozitte 502.5 mg/g olarak bulunmuştur. Adsorpsiyon kinetiği için birinci ve ikinci mertebe kinetik modeller kullanılmıştır. Yapılan kinetik çalışmalarda beş nanokompozitin de birinci dereceden hız sabitine uyduğu bulunmuştur.

Anahtar Kelimeler: Aktif Karbon, ZnO, Manyetik kompozit, Boya giderimi, Kinetik.

Synthesis of Magnetic Activated Carbon / ZnO Composite and Equilibrium and Kinetics Application on the Removal of Dyestuff

Abstract

In this study, activated carbon was prepared by chemical activation from waste rubber, and then magnetic activated carbon/ZnO nanocomposites were synthesized by single step thermal method. The equilibrium and kinetic study of dye adsorption in aqueous solution of synthesized composites was investigated. Physicochemical properties and characterization of nanocomposites were determined by nitrogen adsorption, SEM-EDX and XRD. Adsorption capacities of five different magnetic activated carbon / ZnO nanocomposites were calculated by applying Langmuir and Freundlich isotherm models for Malachite green (MG) in aqueous solution. According to the results, the highest adsorption capacity was found to be 502.5 mg/g in the magnetic nanocomposite produced by hexamethylene tetramine (HMTA) and ZnCl₂. First and second order kinetic models were used for adsorption kinetics. Accordingly, five nanocomposites were found to match the pseudo-first-order kinetics.

Keywords: Activated carbon, Magnetic composite, ZnO, Dye removal, Kinetic.

^{*} Sorumlu Yazar: Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi, Kimya ve Kimyasal Proses Teknolojisi Bölümü, Zonguldak, Türkiye, ORCID: 0000-0003-0008-1456, <u>atakantoprak2@hotmail.com</u>

1. Giriş

Dünyada yıllık 700.000 ton boyar madde üretilirken bu boyar maddelerin 100.000'den fazla farklı çesidi bulunmaktadır. Yani her yıl 700.000 ton boyar madde su kaynaklarını kirletmektedir (Erdoğan, 2017). Atık suların doğal su kaynaklarına karışması ya da yer altı sularına ulaşması sonucu bu kirlilik çığ gibi büyümektedir. Günümüzde verimli su kullanımı ve geri dönüşüm gibi konular her geçen gün önem kazanmaktadır. Atık su geri dönüşümünde boyar maddelerin giderimi önemli bir yer tutmaktadır. Boyar maddelerin kullanımı sanayinin çok çeşitli alanlarından sağlık endüstrisine kadar çok geniş bir alanı kapsamaktadır. Bu geniş kapsamlı kullanımın bir sonucu olarak da geride kalan boyar madde atıkları doğa ve canlı hayatı için büyük tehlike arz etmektedir. Boyaların kanserojen etkisi yanında sulu ortamda artan azo boyar maddeler güneş ışığının deniz tabanına erişimini engelleyerek suda yaşayan bitki ve canlı dengesinde olumsuz yönde etkilemektedir (Aluigi ve ark., 2014). Sulu ortamlardan boyar maddelerin uzaklaştırılması için literatürde birçok farklı yöntem kullanılmaktadır. Adsorpsiyon en çok ilgi gören yöntemlerin başından gelmektedir. Adsorpsiyonda yaygın olarak kullanılan adsorbentlerin başında aktif karbonlar, polimerik malzemeler ve zeolit gibi ürünler gelmektedir (Kopaç ve ark., 2016; Toprak ve Bozgevik, 2017; Yener ve ark., 2006). Adsorpsiyonda, diğer adsorbentlere göre aktif karbonun ilgi çekici olmasının nedenleri arasında üretiminin kolay olması, üretim maliyetinin düşük ve geleneksel yöntemler ile üretilebilmesi büyük rol oynamaktadır. Adsorbentlerin, adsorpsiyon işlemi tamamlandıktan sonra sulu sistemden uzaklaştırılması ayrılması ve yenilenmesi gerekmektedir. Ayrılan adsorbentin içerisindeki boyar maddenin uzaklaştırılarak tekrar sisteme dahil edilmesi birim üründen daha fazla verim alınmasını sağlamaktadır. Ancak, ayırma prosesi normalde santrifüjleme veya filtrasyon gibi karmaşık sistemleri içermektedir (Do ve ark., 2011; Fuertes ve Tartaj, 2006). Buna ek olarak, kirleticilerin sudan adsorpsiyon oranını arttırmak için, aktif karbon ve toz halindeki aktif karbon (PAC) gibi küçük toz parçacıklarının mikro-nano boyutları genellikle kullanılmaktadır. Bu durumun ne yazık ki, filtrelerin tıkanmasına, proseste aksaklıklara veya malzeme kaybına neden olmaktadır. Adsorbentlerin sistemden uzaklaştırma problemini çözmek adına son zamanlarda araştırmalar manyetik olarak ayrılabilir malzemeler üretilmesine odaklanmıştır. Bu savede ayırma islemi, manyetik bir alan uygulanarak büyük ölcüde basitleştirilmektedir (Wang ve ark., 2008; Yang ve ark., 2008).

Katyonik boyar madde olan malahit yeşili, kumaş yüzeyi ve plastik yüzeylerin renklendirilmesinde de kullanılan dispers boyar maddeler kategorisinde yer almaktadır. Dispers boyar maddeler boyamada meydana getirdikleri özellikler ile bu adı alırlar. Dispers boyar maddeler içerdikleri fonksiyonel gruplara göre kinaftalon, antrakinon, noftakinon ve azo boyar madde olarak isimlendirilir (Akkurt ve ark., 2005).

Bu çalışmada, atık kauçuktan kimyasal aktivasyon ve devamında termal yöntem ile gözenekli yapıya sahip manyetik özellikte kompozitler üretilmiştir. Üretilen farklı özellikteki manyetik aktif karbon/ZnO kompozitlerinin, sulu ortamda MG gideriminin kinetik ve denge uygulamaları yapılarak kapasiteleri belirlenmiştir.

2. Materyal ve Metot

2.1. Aktif Karbon Üretimi

Aktif karbon üretmek amacıyla, Zonguldak bölgesinde faaliyet gösteren kauçuk fabrikasının atık departmanından temin edilen kauçuk, saf su ile yıkama işlemi yapılarak yüzeydeki kirleticiler uzaklaştırılmıştır. Ardından 300-500 µm aralığında öğütülen kauçuk fırında 25 °C/dak artış hızında 800 °C'de 1 saat tutularak karbonizasyon işlemi uygulanarak karbonize kauçuk (KK) elde edilmiştir (Kopac ve Toprak, 2007). KK numunesindeki inorganik ve kirletici maddelerin yapıdan uzaklaştırılması amacıyla, % 7'lik H₂O₂ ile 50 °C'de geri soğutucu altında 750 rpm'de 5 saat karıştırılarak KK-H₂O₂ üretilmiştir. KOH'in KK-H₂O₂ ile ağırlıkça 4:1 oranında sulu çözeltisi 70 °C'de 1 saat karıştırmıştır (750 rpm) ve 60 °C'de 1 saat sonikasyon uygulaması gerçekleştirilmiştir. Etüvde 90 °C'de kurutma işlemleri uygulanarak sulu kısım uzaklaştırılmıştır. Son aşamada, kimyasal aktivasyon işlemi için karışım kapaklı kroze içerisine alınarak fırında 20 °C/dak artış hızında 800 °C'de 1 saat tutularak aktif karbon (AK) elde edilmiştir

2.2. Manyetik AKZnO (MAKZnO) Sentezi

Tablo 1'de manyetik özelliğe sahip AKZnO kompozitinin kullanılan ağırlıkça oranları aşağıdaki tabloda verilmiştir.

Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi

Kompozit	AK	ZnCl ₂	Zn(NO3)2.6H2O	Fe(NO ₃)3.9H ₂ O	NaOH	HDTMA
MAKZnO 1	1	1		1	1/3	
MAKZnO 2	1	1		2	1/3	
MAKZnO 3	1	1		2		1/3
MAKZnO 4	1		1	2		1/3
MAKZnO 5	1	2		2		1/3

Tablo 1. MAKZnO Sentezinde Kullanılan Kimyasallar ve Oranları

Tablo 1'de belirtilen oranlar alınarak nanokompozit üretimi için AK, Zn(NO₃)₂.6H₂O, Fe(NO₃)₃.9H₂O ve NaOH ya da Hekzametilen tetramin (HMTA) tartılarak etanolde çözüldü. AK ve Zn(NO₃)₂.6H₂O çözeltisi manyetik karıştırıcıda 10 dakika (dak) karıştırıldıktan sonra içerisine Fe(NO₃)₃.9H₂O çözeltisi yavaşça eklendi ve 10 dak daha karıştırıldı. Son olarak hazırlanmış olan NaOH ya da HMTA çözeltisi damla damla karışıma eklendi. NaOH ya da HMTA ilavesiyle karışımda çökelti oluşmaya başladı. Karışım 90 °C'de 1 saat (sa) geri soğutucuda karıştırıldı ve 95°C'deki etüvde çözücü tamamen uçana kadar bırakıldı. Etüvden alınan kuru haldeki çökelek kapaklı krozeye alınarak fırında 30 °C/dak artış hızında 750 °C'ye çıkarıldı ve burada 20 dak tutuldu. Elde edilen ürün sıcak saf su ile defalarca yıkama işlemlerinden geçirildikten sonra etüvde kurutuldu. Bu şekilde manyetik (M) özelliğe sahip AKZnO kompoziti (MAKZnO) elde edildi. Şekil 1'de MAK/ZnO nanokompozit'in üretim şeması gösterilmektedir.



Şekil 1. MAKZnO nanokompozit üretim şeması.

2.3. Adsorpsiyon Kinetiği Deney Prosedürü

MAKZnO nanokompozitlerin adsorpsiyon kinetiğinin ve kapasitesinin incelenmesi için, MG'nin sulu ortamdaki adsorpsiyon deneyleri gerçekleştirilmiştir. Deneylerde 20 mg/L'lik MG'den 50 ml alınarak farklı miktarlardaki (2-10 mg) adsorbentler ile oda sıcaklığında karıştırılmıştır. MG adsorbent karışımından belirli zaman aralıklarında örnek alınarak UV-Vis cihazında 615 nm dalga boyunda adsorbans değişimleri incelenmiştir. MAKZnO 1–5 örneklerindeki elde edilen zamana karşı derişim değerleri Langmuir ve Freundlich izoterm modellerine uygulanarak adsorpsiyon kapasiteleri belirlenmiştir.

3. Araştırma Sonuçları ve Tartışma

3.1. MAKZnO Karakterizasyonu

Şekil 2-6'da MAK/ZnO 1-5'lerin Taramalı Elektron Mikroskobu-Enerji yayılımlı X-Işını Analizi (SEM-EDX) ile yüzey morfolojisi ve elementlerin ağırlıkça yüzdeleri verilmiştir. Şekil 2-6'daki SEM resimlerinin hepsinde AK'nun yüzeyinde Fe ve

European Journal of Science and Technology

Zn'nun oksitleri şeklinde biriktiği gözlenmiştir. Bu kümelenmeler düzensiz ve yüzeyde farklı boyutlarda gözenekler ve oyuklar oluşturmuştur.



Şekil 2. MAKZnO 1'in SEM görüntüsü ve EDX analizi



Şekil 3. MAKZnO2'nin SEM görüntüsü ve EDX analizi



Şekil 4. MAKZnO 3'ün SEM görüntüsü ve EDX analizi

Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi



Şekil 5. MAKZnO 4'ün SEM görüntüsü ve EDX analizi



Şekil 6. MAKZnO 5'in SEM görüntüsü ve EDX analizi

Şekil 7'de AK'nun ZnCl₂ ve Fe(NO₃)₃.9H₂O ile eşit oranlarda ve bazik ortam sağlaması için NaOH kullanılarak üretilen MAKZnO 1'in X-Işını Kırınım yöntemi (XRD) pikleri görülmektedir. MAKZnO 1 kompozitinde XRD piklerinden yararlanılarak; Fe₃O₄ (Magnetit), Fe₂O₃ (Hematit), ZnO kristalleri ve metalik Fe olduğu belirlenmiştir. Fe₃O₄'ün $2\theta = 35,5^{\circ}$ 'deki piklinin (311) yönelimli kübik yapıda olduğunu göstermektedir. 25.5° ve 34°'deki pikler ise Fe₂O₃'ün karakteristik (012) ve (104) düzelmelerinin indeksidir. ZnO'nun $2\theta = 31.5^{\circ}$ 'deki karakteristik (100) düzlemli piki kompozitte ZnO kristallerinin oluşumunu ispatlamaktadır. Ayrıca MAKZnO 1'in Debye-Scherrer eşitliği (Chaki ve ark., 2015), yukarıda belirlenen karakteristik XRD piklerine uygulayarak Fe₃O₄, Fe₂O₃ ve ZnO'nun ortalama kristal boyutları hesaplanmıştır. Buna göre; ZnO, Fe₃O₄ ve Fe₂O₃'ün ortalama kristal boyutları sırasıyla, 48.16, 42.56 ve 55.45 nm olarak bulunmuştur.

European Journal of Science and Technology



Şekil 7. MAKZnO 1 XRD spektrumu

Şekil 8'de MAKZnO 2'in XRD pikleri görülmektedir. MAKZnO 2, MAKZnO 1'e göre sadece Fe(NO₃)₃.9H₂O oranın 2 katına çıkartılarak üretilmiştir. MAKZnO 2'nin XRD piklerinden de Fe₃O₄ (Magnetit), Fe₂O₃ (Hematit), ZnO kristalleri ve metalik Fe olduğu belirlenmiştir. MAK/ZnO 2'nin Debye-Scherrer eşitliğinden yararlanılarak ortalama gözenek boyutları; Fe₃O₄'ün 2 θ = 35,5°'deki pikinden (311) bulunan ortalama kristal boyutu 37.83 nm'dir. Fe₂O₃'ün karakteristik 25.5°'deki (012) yönelimli pikinden hesaplanan ortalama kristal boyutu 66.54 nm ve ZnO'nun 2 θ = 31.5°'deki karakteristik (100) düzlemli pikinden hesaplanan ortalama kristal boyutu.



Şekil 8. MAKZnO 2 XRD spektrumu

Şekil 9'da MAKZnO 3'ün XRD pikleri görülmektedir. MAKZnO 3, MAKZnO 2'ye göre sadece bazik ortam sağlayıcısı olarak NaOH yerine HMTA kullanılarak üretilmiştir. MAKZnO 3'de de Fe₃O₄ (Magnetit), Fe₂O₃ (Hematit), ZnO kristalleri ve metalik Fe olduğu XRD piklerinde görülmüştür. MAKZnO 3'deki ZnO (100), Fe₃O₄ (311) ve Fe₂O₃'ün (012) hesaplanan ortalama kristal boyutları sırasıyla, 48.14, 48.65 ve 66.55 nm olarak bulunmuştur.

Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi



Şekil 9. MAKZnO 3 XRD spektrumu

MAKZnO 4, ZnCl₂ yerine Zn(NO₃)₂.6H₂O kullanılarak üretilen kompozitin XRD spektrumu Şekil 10'da verilmiştir. ZnCl₂ ile üretilen kompozitlerin hepsinde Fe₂O₃ (Hematit) elde edilmiştir. Ancak Zn(NO₃)₂.6H₂O ile üretilen MAKZnO 4'de Fe₂O₃ oluşmamıştır. MAKZnO 4 kompozittinde; $2\theta = 35.5^{\circ}$ 'deki Fe₃O₄ pikinin hesaplanan ortalama kristal boyutu 37.83 nm'dir. $2\theta = 31.5^{\circ}$ 'deki ZnO pikinin ise ortalama kristal boyutu 56.23 nm olarak bulunmuştur.



Şekil 10. MAKZnO 4 XRD spektrumu

Şekil 11'de MAKZnO 3'e göre; ZnCl₂'nin iki katı kullanılarak üretilen MAKZnO 5'in XRD spektrumu görülmektedir. MAKZnO 5'de de Fe₃O₄ (Magnetit), Fe₂O₃ (Hematit), ZnO kristalleri ve metalik Fe olduğu XRD piklerinde görülmüştür. MAKZnO 5'deki ZnO (100), Fe₃O₄ (311) ve Fe₂O₃'ün (012) hesaplanan ortalama kristal boyutları sırasıyla, 42.13, 42.58 ve 55.46 nm olarak bulunmuştur.



Şekil 11. MAKZnO 5 XRD spektrumu

3.2 Adsorpsiyon Dengesi

Üretilen MAKZnO 1-5 numunelerinin farklı miktarlarda (2-10 mg) ve 50 ml MG boya çözeltisinde adsorpsiyon deneyleri gerçekleştirilmiştir. Bu deneylerde zamana karşı (t) adsorplanan boya (q) miktarlarından elde edilen denge verileri Langmuir (Langmuir, 1916) ve Freundlich (Freundlich, 1926) modellerine uygulanmıştır ve Ek-1 (Şekil 12-21)'de grafikleri verilmiştir. Elde edilen grafiklerin verilerinden hesaplanan Q_0 değerleri sırası ile 173 mg/g, 448 mg/g, 502.5 mg/g, 427.4 mg/g, 458.7 mg/g olarak bulunmuştur. MAKZnO 3'ün en yüksek Q_0 değerlere sahip olduğu tespit edilmiştir. Tablo 2'de verilen model parametreleri ve R^2 değerleri incelendiğinde hem Freundlich hem Langmuir için uyumlu olduğunu göstermiştir.

Modeller	MAKZnO 1	MAKZnO 2	MAKZnO 3	MAKZnO 4	MAKZnO 5
Langmuir $q_e = \frac{Q_o b C_e}{1 + b C_e}$	Q ₀ : 173 mg/g	Q ₀ : 448 mg/g	Q ₀ : 502.5mg/g	Q ₀ : 427.4 mg/g	Q ₀ : 458.7 mg/g
	b: 0.33	b: 0.011	b: 0.096	b: 0.11	b: 0.12
	R ² : 0.81	R ² : 0.90	R ² : 0.80	R ² : 0.90	R ² : 0.92
Freundlich $q_e = K_f C_e^{1/n}$	K _f : 47.8	K _f : 47.8	K _f : 45.2	K _f : 47.3	K _f : 56.4
	1/n: 0.50	1/n: 0.76	1/n: 0.82	1/ n: 0.75	1/n: 0.68
	R ² : 0.86	R ² : 0.90	R ² : 0.65	R ² : 0.93	R ² : 0.94

Tablo 2. Langmuir ve Freundlich model parametreleri.

3.3 Adsorpsiyon Kinetiği

Şekil 22 ve Şekil 23'de MAK/ZnO – MG adsorpsiyon sistemlerinin Lagergren yalancı-birinci ve ikinci derece hız sabitlerinin elde edilmesi için zamana karşı $\log(q_e-q)$ ve $1/(q_e-q)$ değerlerinin değişimleri verilmiştir (Ho ve McKay, 1999; Lagergren, 1898).

Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi

Bu grafiklerdeki doğruların eğiminden ve kesim noktasından yararlanarak k_1 , k_2 ve korelasyon katsayıları karesi (R^2) değerleri bulunmuştur. Tablo 3'de verilmiştir. k_1 , k_2 hız sabitlerinin R^2 değerleri karşılaştırıldığında, birinci derece için R^2 değerlerinin tüm ortamlar için daha yüksek olduğu bulunmuştur. Bu sonuçlara göre boyar maddenin MAK/ZnO üzerine adsorpsiyonu üzerine tutunmanın fiziksel adsorpsiyon ile gerçekleştiğini desteklemektedir (Zheng ve ark., 2019).



Şekil 22. Birinici derece kinetik eğrileri (m_{ads}: 0.12 g/L).



Şekil 23. İkinci derece kinetik eğrileri (m_{ads} : 0.12 g/L).

Tablo 3. Birinci ve ikinci derece kinetik parametreleri (mads: 0.12 g/L)

Adsorbentler	MAKZnO 1	MAKZnO 2	MAKZnO 3	MAKZnO 4	MAKZnO 5
$k_1(dak^{-1})$	0.009	0.011	0.018	0.008	0.012
R^2	0.97	0.92	0.72	0.88	0.94
k2 (g/mg.dak)	7x10 ⁻⁴	0.0015	0.003	5x10 ⁻⁴	0.014
R^2	0.66	0.25	0.19	0.45	0.47

4. Sonuç

Bu çalışmada, MAKZnO nanokompozitleri, tek basamakta kimyasal aktivasyon ve termal yöntemler kullanılarak atık kauçuktan üretilmiştir. MAKZnO 1-5 nanokompozitlerin yüzey özellikleri ve morfolojik özellikleri belirlenmiştir. MAKZnO nanokompozitleri MG adsorpsiyonu için elde edilen deneysel denge verileri Langmuir ve Freundlich izoterm modellerine uygulanmıştır. En yüksek adsorpsiyon kapasitesi 502.5 mg/g ile MAKZnO 3 nanokompozitinde bulunmuştur. Ayrıca MAKZnO 1-5 nanokompozitlerine Lagergren'in birinci ve sözde ikinci dereceli kinetik modelleri uygulanmıştır. Birinci ve ikinci derece kinetik modellerine ait R² değerleri incelendiğinde, 25 °C için MG'nin MAKZnO nanokompozit yüzeyler üzerine adsorpsiyon hızının birinci derece kinetik modeli ile daha iyi uyum sağladığı bulunmuştur. Bu durum MG moleküllerinin MAKZnO üzerine tutunmasının fiziksel adsorpsiyon ile gerçekleştiğini desteklemektedir.

5. Teşekkür

Bu çalışma Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi (proje no: 2018-52349806-01) tarafından desteklenmiştir.

Kaynakça

- Akkurt, F., Benli, S., Alicilar, A. (2005). Dispers Kirmizi 1 Tekstil Boyasinin Karakterizasyonu Ve Uygulanabilirliğinin Araştirilmasi. *Gazi Üniversitesi Mühendislik-Mimarlık Fakültesi Dergisi, 20*(4).
- Aluigi, A., Rombaldoni, F., Tonetti, C., Jannoke, L. (2014). Study of Methylene Blue adsorption on keratin nanofibrous membranes. *Journal of hazardous materials*, 268, 156-165.
- Chaki, S., Malek, T. J., Chaudhary, M., Tailor, J., Deshpande, M. (2015). Magnetite Fe3O4 nanoparticles synthesis by wet chemical reduction and their characterization. *Advances in Natural Sciences: Nanoscience and Nanotechnology*, *6*(3), 035009.
- Do, M. H., Phan, N. H., Nguyen, T. D., Pham, T. T. S., Nguyen, V. K., Vu, T. T. T., Nguyen, T. K. P. (2011). Activated carbon/Fe₃O₄ nanoparticle composite: Fabrication, methyl orange removal and regeneration by hydrogen peroxide. *Chemosphere*, *85*(8), 1269-1276.
- Erdoğan, F. O. (2017) Düşük Maliyetli Adsorbentler Üzerine Dispers Sarı 211 Tekstil Boyasının Adsorpsiyonu. Afyon Kocatepe Üniversitesi Fen ve Mühendislik Bilimleri Dergisi, 17(3), 889-898.
- Freundlich, H. (1926). Colloid & capillary chemistry: Methuen & co. ltd.
- Fuertes, A. B., Tartaj, P. (2006). A facile route for the preparation of superparamagnetic porous carbons. *Chemistry of Materials,* 18(6), 1675-1679.
- Ho, Y.-S., McKay, G. (1999). Pseudo-second order model for sorption processes. Process biochemistry, 34(5), 451-465.
- Kopac, T., Sulu, E., Toprak, A. (2016). Effect of KOH treatment on bituminous coal for the effective removal of Basic Blue 41 dye from aqueous solutions. *Desalination and Water Treatment*, 57(59), 29007-29018.
- Kopac, T., Toprak, A. (2007). Preparation of activated carbons from Zonguldak region coals by physical and chemical activations for hydrogen sorption. *International Journal of Hydrogen Energy*, *32*(18), 5005-5014.
- Lagergren, S. (1898). Zur theorie der sogenannten adsorption geloster stoffe. *Kungliga svenska vetenskapsakademiens. Handlingar*, 24, 1-39.
- Langmuir, I. (1916). The constitution and fundamental properties of solids and liquids. Part I. Solids. *Journal of the American chemical society*, 38(11), 2221-2295.
- Toprak, A., Bozgeyik, K. Examination of the Effects of Activated Carbon Produced from Coal Using Single-Step H₃PO₄/N₂+ H₂O Vapor Activation on the Adsorption of Bovine Serum Albumin at Different Temperatures and pH Values. *Journal of the Turkish Chemical Society, Section A: Chemistry, 5*(1), 219-236.
- Wang, D.-W., Li, F., Lu, G. Q., Cheng, H.-M. (2008). Synthesis and dye separation performance of ferromagnetic hierarchical porous carbon. *Carbon*, 46(12), 1593-1599.
- Yang, N., Zhu, S., Zhang, D., Xu, S. (2008). Synthesis and properties of magnetic Fe₃O₄-activated carbon nanocomposite particles for dye removal. *Materials Letters*, 62(4-5), 645-647.
- Yener, J., Kopac, T., Dogu, G., Dogu, T. (2006). Adsorption of Basic Yellow 28 from aqueous solutions with clinoptilolite and amberlite. *Journal of Colloid and Interface Science*, 294(2), 255-264.
- Zheng, X., Feng, S., Wang, X., Shi, Z., Mao, Y., Zhao, Q., Wang, S. (2019). MSNCs and MgO-MSNCs as drug delivery systems to control the adsorption kinetics and release rate of indometacin. *Asian Journal of Pharmaceutical Sciences*, 14(3), 275-286.